ACKNOWLEDGEMENT REC. . . .

DATE:

2 2 OCT 2004

**WIPO PCT** 



FROY /01841

## BREVET D'INVENTION

## BEST AVAILABLE COPY

**CERTIFICAT D'UTILITÉ - CERTIFICAT D'ADDITION** 

### **COPIE OFFICIELLE**

Le Directeur général de l'Institut national de la propriété industrielle certifie que le document ci-annexé est la copie certifiée conforme d'une demande de titre de propriété industrielle déposée à l'Institut.

Fait à Paris, le 15 JUIL 2004

Pour le Directeur général de l'Institut national de la propriété industrielle Le Chef du Département des brevets

DOCUMENT DE PRIORITÉ

PRÉSENTÉ OU TRANSMIS CONFORMÉMENT À LA RÈGLE 17.1.a) OU b)

Martine PLANCHE



## BREVET D'INVENTION CERTIFICAT D'UTILITÉ

Code de la propriété intellectuelle - Livre VI



## REQUÊTE EN DÉLIVRANCE page 1/2



eteprione : 55 (1) of 6 ; of	_	Cet imprimé est à remplir lisiblement à l'encre noire DB 540 e W / 210502
EMISE DESPECES UIL Z (\$290% à LINDI)		NOM ET ADRESSE DU DEMANDEUR OU DU MANDATAIRE
DATE 75 INPI PARIS		À QUI LA CORRESPONDANCE DOIT ÊTRE ADRESSÉE
0308647		Georges BOURGEOIS SAINT-GOBAIN RECHERCHE
N° D'ENREGISTREMENT NATIONAL ATTRIBUÉ PAR L'INF	η	39 QUAI LUCIEN LEFRANC
date de dépôt attribuée Par l'inpi	1 6 JUIL. 2003	93300 AUBERVILLIERS
Vos références pour ce dossier (jacultatif) GB2 2003060 FR		•
Confirmation d'un	dépôt par télécopie	N° attribué par l'INPI à la télécopie
2 NATURE DE LA		Cochez l'une des 4 cases sulvantes
Demande de bre		
Demande de cer		
Demande divisio	nnaire	□ , , , , ,
	Demande de brevet initiale	N° Date
ou demana	le de certificat d'utilité initiale	N° Date
Transformation	d'une demande de	
	Demande de brevet initiale VENTION (200 caractères ou	N° Date
DÉCLARATION DE PRIORITÉ		Pays ou organisation Date L
•	DU BÉNÉFICE DE	Pays ou organisation Date
LA DATE DE DÉPÔT D'UNE DEMANDE ANTÉRIEURE FRANÇAISE		Pays ou organisation Date N° S'il y a d'autres priorités, cochez la case et utilisez l'imprimé «Suite»
The same special state of the state of the	CANAL CONTRACTOR OF CONTRACTOR	The state of the s
5 DEMANDEUR	(Cochez l'une des 2 cases)	THE RESERVE OF THE PARTY OF THE
Nom ou dénomination sociale		SAINT-GOBAIN GLASS FRANCE
Prénoms		
Forme juridique		
N° SIREN		
Code APE-NAF		
Domicile	Rue	18 AVENUE D'ALSACE
ou siège	Code postal et ville	[9,2,4,0,0] COURBEVOIE
	Pays	FRANCE
Nationalité		FRANCAISE
N° de télépho	one <i>(facultatif)</i>	N° de télécopie (facultatif)
Adresse électronique (facultatif)		
		S'il y a plus d'un demandeur, cochez la case et utilisez l'imprimé «Suite»



### BREVET D'INVENTION CERTIFICAT D'UTILITÉ

## REQUÊTE EN DÉLIVRANCE page 2/2



REMISE DES PIÈCES DATE 75 INPI PA	RIS				
UEU 0308647					
N° D'ENREGISTREMENT				20 540 14 4 0 1552	
NATIONAL ATTRIBUE PAR L'IN		eretur ter dinakte i Nort	GRAL SERVE SEERAL FULFILLE SUSSE	08 540 W / 210502	
G MANDATAIRE	sily a lieu)				
Nom			BOURGEOIS		
Prénom		GEORGES			
Cabinet ou Socié	ete	SAINT-GOBAIN	RECHERCHE		
N °de pouvoir pe de lien contractu		422-5/S.006	422-5/S.006		
1	Rue		39 QUAI LUCIEN LEFRANC		
Adresse	Code postal et ville	19 13 13 10 10 AU	BERVILLIERS		
I	Pays	FRANCE			
N° de téléphone		01 48 39 59 52			
N° de télécopie		01 48 34 66 96	···		
	nique (facultatif)				
MINVENTEUR (S)		Les inventeurs s	ont nécessairement des pe	rsonnes physiques	
Les demandeurs et les inventeurs sont les mêmes personnes		U Oui ☑ Non: Dans	ce cas remplir le formulai	re de Désignation d'inventeur(s)	
RAPPORT DE	RECHERCHE"	Uniquement pou	r une demande de brevet (	(y compris división et transformation)	
Établissement immédiat ou établissement différé		X			
Paiement échelonné de la redevance (en deux versements)		Uniquement pour les personnes physiques effectuant elles-mêmes leur propre dépôt  Oui  Non			
RÉDUCTION DU TAUX DES REDEVANCES		Uniquement pour les personnes physiques  Requise pour la première fois pour cette invention (joindre un avis de non-imposition)  Obtenue antérieurement à ce dépôt pour cette invention (joindre une copie de la décision d'admission à l'assistance grafuite ou indiquer sa référence): AG			
SÉQUENCES DE NUCLEOTIDES ET/OU D'ACIDES AMINÉS		Cochez la case si la description contient une liste de séquences			
Le support électronique de données est joint					
La déclaration de conformité de la liste de séquences sur support papier avec le support électronique de données est jointe					
Si vous avez utilisé l'imprimé «Suite», indiquez le nombre de pages jointes					
OU DU MAND (Nom et quali Georges	DU DEMANDEUR LATAIRE LITÉ du SISMONTAIRE L'ATOURGEDIS 100-8/8/1008			VISA DE LA PRÉFECTURE OU DE L'INPI	

in 1970 in 1970 de 197 La companya de 1970 de

10

15

20

25

30

# FILM ELECTROCOMMANDABLE A PROPRIETES OPTIQUES ET/OU ENERGETIQUES VARIABLES

L'invention concerne les dispositifs électrocommandables à propriétés optiques et/ou énergétiques variables. Elle s'intéresse plus particulièrement aux dispositifs utilisant des systèmes électrochromes, fonctionnant en transmission ou en réflexion.

Des exemples de systèmes électrochromes sont décrits dans les brevets US-5 239 406 et EP-612 826.

Les systèmes électrochromes ont été très étudiés. Ils comportent de façon connue généralement deux couches de matériaux électrochromes séparées par un électrolyte et encadrées par deux électrodes. Chacune des couches électrochromes, sous l'effet d'une alimentation électrique, peut insérer réversiblement des charges, la modification de leur degré d'oxydation suite à ces insertions/désinsertions conduisant à une modification dans leurs propriétés optiques et/ou thermiques (par exemple, pour l'oxyde de tungstène, un passage d'une coloration bleue à un aspect incolore).

Il est d'usage de ranger les systèmes électrochromes en trois catégories :

- ➤ celle où l'électrolyte est sous forme d'un polymère ou d'un gel ; par exemple un polymère à conduction protonique comme ceux décrits dans les brevets EP-253 713 ou EP-670 346, ou un polymère à conduction d'ions lithium comme ceux décrits dans les brevets EP-382 623, EP-518 754 et EP-532 408 ; les autres couches du système étant généralement de nature minérale,
- ➤ celle où l'électrolyte est une couche essentiellement minérale. On désigne souvent cette catégorie sous le terme de système « tout-solide », on pourra en trouver des exemples dans le brevet EP-867 752, EP-831 360, la demande de brevet français FR-2 791 147, la demande de brevet français FR-2 781 084,

10

15

20

25

30

➤ celle où l'ensemble des couches est à base de polymères, catégorie que l'on désigne souvent sous le terme de système « tout-polymère ».

Beaucoup d'applications ont déjà été envisagées pour ces systèmes. Il s'est agit, le plus généralement, de les employer comme vitrages pour le bâtiment ou comme vitrages pour véhicule, notamment en tant que toits auto, ou encore, fonctionnant alors en réflexion et non plus en transmission, en tant que rétroviseurs anti-éblouissement.

Quelle que soit la catégorie du système électrochrome, celui-ci comporte un empilement de couches fonctionnelles qui comprend essentiellement deux couches de matériau électrochrome séparées par une couche d'électrolyte et encadrées par deux couches conductrices. Classiquement les diverses couches formant cet empilement fonctionnel sont déposées sur des substrats verriers ou intégrés au sein de ces substrats par diverses techniques connues de l'homme de l'art (CVD, technique sol/gel, magnétron, spin-coating...), qui nécessitent toutes cependant d'être mises en œuvre selon des modes opératoires très stricts afin de conserver les propriétés optimales de l'empilement.

La présente invention vise donc à pallier ces inconvénients en proposant un dispositif électrocommandable à propriétés optiques/énergétiques de transmission ou de réflexion variable qui facilite son intégration au sein de substrats.

L'invention a alors pour objet un dispositif électrocommandable à propriétés optiques/énergétiques de transmission ou de réflexion variables, caractérisé en ce qu'il est conformé en un film auto supporté, ledit film étant formé à partir d'un mélange d'au moins un premier élément adapté pour apporter une fonctionnalité électrochrome au mélange, et d'au moins un second élément adapté pour apporter une fonctionnalité d'électrolyte de transport de charges ioniques au sein dudit mélange.

Grâce à l'utilisation d'un film auto-supporté incorporant tous les matériaux nécessaires à la réalisation d'une fonction électrocommandable, il devient possible de dissocier l'élaboration de l'empilement de couches fonctionnelles de celle des substrats permettant ainsi de conserver des procétée d'assemblage standard étre llorage palandre de étulisation procétée d'assemblage standard étre llorage palandre de étulisation procétée.

Dans des modes de réalisation préférés de l'invention, on peut éventuellement avoir recours en outre à l'une et/ou à l'autre des dispositions suivantes :

- suivantes:

  le mélange constitue une matrice unique qui est obtenue par polymérisation successive des premier et second éléments inclus initialement dans le mélange,

  le mélange constitue une matrice unique qui est obtenue par polymérisation simultanée des premier et second éléments inclus initialement dans le mélange,

  le mélange constitue une matrice unique qui est obtenue par polymérisation des premier et second éléments inclus
  - successivement,
    le premier élément est un polymère conducteur,
  - le premier élément est un polymère à base de 3, 4 alkylène dioxy thiophène ou pyrrole ou l'un de ses dérivés,
  - le premier élément est un polymère à base de carbazole ou l'un de ses dérivés,
  - le premier élément est un polymère à base de polyaniline ou l'un de ses dérivés,
- le premier élément est un mélange d'au moins deux matériaux électrochromes, l'un au moins ayant une coloration anodique, l'autre ayant une coloration cathodique,

15

25

- le matériau à coloration cathodique est un sel de bipyridine,
- le matériau à coloration anodique est à base de 5, 10-phénazine ou l'un de ses dérivés,
- le second élément est un polymère choisi parmi les polyoxyalkylènes,
- le second élément est choisi parmi les polyoxyéthylènes ou l'un de ses dérivés,
- le second élément est à base de poly(éthylène glycol) difonctionnel (acrylate, méthacrylate, alcool, allylique,...),
  - le film auto supporté comporte éventuellement un troisième élément adapté pour améliorer sa tenue mécanique ou pour améliorer la conductivité ionique,

10

15

20

25

- le troisième élément est mélangé avec le second élément et leur polymérisation est simultanée ou successive,
- le troisième élément est un polymère choisi notamment parmi les polyacrylates, poly(méthacrylates), poly(carbonates), polyacétate, polyuréthanes, cellulosiques,...
- le troisième élément est à base de diallyl carbonate de diéthylène glycol ou un de ses dérivés ou encore de poly(éthylène glycol) méthyl éther méthacrylate ...,
- le film constitue un réseau interpénétré de polymères à au moins deux composants,
  - le film constitue un réseau semi-interpénétré de polymères à au moins deux composants,
  - il présente un gradient de composition du premier élément situé selon une dimension caractéristique du film,
- il comporte en outre au moins un substrat porteur, ledit dispositif
  étant disposé entre deux amenées de courant, respectivement
  inférieure et supérieure (« inférieure » correspondant à l'amenée
  de courant la plus proche du substrat porteur, par opposition à
  l'amenée de courant « supérieure » qui est la plus éloignée dudit
  substrat),

Selon un autre aspect de l'invention, celle-ci vise un système électrochrome élaboré à partir d'au moins un dispositif électrochrome ou viologène tel que précédemment décrit.

Dans des modes de réalisation préférés de l'invention, on peut éventuellement avoir recours en outre à l'une et/ou à l'autre des dispositions suivantes :

- il s'agit d'un toit auto pour véhicule, activable de façon autonome, ou d'une vitre latérale ou d'une lunette arrière pour véhicule, ou d'un rétroviseur,
- 30 il s'agit d'un pare-brise ou d'une portion de pare-brise,
  - il s'agit d'un panneau d'affichage d'informations graphiques et/ou alphanumériques, d'un vitrage pour le bâtiment, d'un rétroviseur,

d'un hubictiou d'un carabiles d'avicn, ou d'une tenème de mit

présentoir, d'un comptoir de magasin pouvant être bombé, d'un vitrage de protection d'objet du type tableau, d'un écran anti-éblouissement d'ordinateur, d'un mobilier verrier, d'une paroi de séparation de deux pièces à l'intérieur d'un bâtiment ou d'une automobile

5

10

15

20

25

30

- il fonctionne en transmission ou en réflexion,
- le substrat est transparent, plan ou bombé, clair ou teinté dans la masse, de forme polygonale ou au moins partiellement courbe,
- le substrat est opaque ou opacifié,
- il incorpore une autre fonctionnalité.

Selon encore un autre aspect de l'invention, celle-ci vise un procédé d'obtention d'un dispositif tel que précédemment décrit qui se caractérise en ce que :

- on mélange le second élément avec éventuellement le troisième élément en présence d'au moins un agent initiateur de polymérisation,
- on procède à la polymérisation du second élément par activation thermique du mélange et on poursuit l'activation thermique du mélange afin d'obtenir la polymérisation du troisième élément

÷

- le deuxième et le troisième élément sont polymérisés ou copolymérisés en une étape par activation thermique du mélange
- on ajoute au mélange des second et troisième éléments, le premier élément, on polymérise le premier élément par trempage du mélange à l'aide d'un agent initiateur de polymérisation, on effectue un rinçage du mélange.

Selon une autre variante du procédé, le premier élément est incorporé initialement dans le mélange de monomère du deuxième et troisième élément. Après polymérisation des second et troisième éléments à l'aide d'au moins un agent initiateur de polymérisation, on polymérise le premier élément par trempage du mélange à l'aide d'un agent initiateur de polymérisation, on effectue un rinçage du mélange,

L'invention sera décrite plus en détail au regard du dessin annexé sur lesquel :

10

15

20

25

30

 la figure unique est une vue schématique d'un dispositif électrocommandable selon l'invention, réalisé selon un premier mode de réalisation,

Sur le dessin annexé certains éléments peuvent être représentés à des dimensions plus grandes ou plus petites que dans la réalité, et ce afin de faciliter la compréhension des figures.

La figure unique représente un verre 1 muni d'une couche conductrice inférieure 2, d'un empilement actif 3, surmonté d'une couche conductrice supérieure 4, d'un premier réseau de fils conducteurs 5 ou d'un dispositif équivalent permettant d'amener du courant électrique au-dessus de la couche conductrice supérieure, d'un second réseau de fils conducteurs 6 ou d'un dispositif équivalent permettant d'amener du courant électrique en dessous de la couche conductrice inférieure 2. Les amenées de courant sont soit des fils conducteurs si la couche active électrochrome est suffisamment conductrice, soit un réseau de fils cheminant sur ou au sein d'une couche formant l'électrode, cette électrode étant métallique ou du type TCO (Transparent Conductive Oxide) en ITO, SnO<sub>2</sub>:F, ZnO :Al, soit une couche conductrice seule.

Les fils conducteurs 5, 6 sont des fils métalliques par exemple en tungstène, éventuellement recouvert de carbone ou d'un oxyde métallique, d'un diamètre compris entre 10 et 100 µm et préférentiellement compris entre 20 et 50 µm, rectilignes ou ondulés, déposés sur une feuille de PU par une technique connue dans le domaine de pare-brise chauffants à fils, par exemple décrite dans les brevets EP-785 700, EP-553 025, EP-506 521, EP-496 669.

Une de ces techniques connues consiste dans l'utilisation d'un galet de pression chauffé qui vient presser le fil à la surface de la feuille de polymère, ce galet de pression étant alimenté en fil à partir d'une bobine d'alimentation grâce à un dispositif guide-fil.

La couche conductrice inférieure 2 est un bicouche constitué d'une première couche SiOC de 50 nm surmontée d'une seconde couche en  $SnO_2$ :F de 400 nm (deux couches de préférence déposées successivement par CVD sur le verre float avant découpe).

Alternativement, il peut s'agir d'un bicouche constitué d'une première ocupha à base da SiC. d'océe ou nonvinciani mentioné avec de l'ocumulum que constitue de la constitue d'une première de la constitué de la constitué

10

15

20

25

30

à 350 nm (deux couches de préférence déposées successivement, sous vide, par pulvérisation cathodique assistée par champ magnétique et réactive en présence d'oxygène éventuellement à chaud).

La couche conductrice supérieure est réalisée de manière analogue à la couche conductrice inférieure 2.

L'empilement actif 3 représenté en figure unique est globalement conformé en un film autosupporté. Au sens de la présente invention, un film est dit « autosupporté » lorsque de par ses propriétés mécaniques, il acquiert une cohésion qui le rend manipulable et conserve sa forme et ses dimensions, ce qui le rend aisément manipulable, transportable, assemblable. Ces propriétés sont obtenues sans la présence de substrat de renfort.

Ce film est obtenu à partir du mélange d'au moins deux éléments : un premier adapté pour apporter une fonctionnalité électrochrome et un second adapté pour apporter une fonctionnalité de transport de charges ioniques.

Selon un premier mode de réalisation, le mélange est obtenu par polymérisation successive des premiers et second éléments inclus successivement, le premier élément étant polymérisé après le second.

ŝ

. . .

 $T_{i}^{\prime}$ 

Selon un deuxième mode de réalisation, le mélange est obtenu par polymérisation successive d'un mélange des premiers et second éléments inclus initialement, le premier élément étant polymérisé après le second

Dans ces deux modes de réalisation, le premier élément est choisi parmi les polymères conducteurs, et plus particulièrement parmi ceux à base de 3, 4-alkylène-dioxythiophène ou l'un de ses dérivés comme par exemple le poly(3, 4-éthylène-dioxythiophène) dénommé PEDT formé par polymérisation chimique.

Par exemple un mélange de poly(éthylèneglycol)diméthacrylate (PEGDM) de masse molaire variable (550 et 875 g/mol) et d'azo-bis-isobutyronitrile (AIBN) est coulé entre deux plaques de verre séparées par un joint en « Téflon ». Un traitement thermique à 50°C suivi d'une post cuisson à 80°C permet la polymérisation / réticulation des fonctions méthacrylate. Le film est ensuite immergé dans une solution d'éthylène dioxy-thiophène (EDT) pur ou d'une solution organique contenant de l'EDT pour permettre l'incorporation du monomère dans le film. Le temps d'immersion variable permettra de contrôler la quantité d'EDT incorporée. Le film est alors immergé dans une solution

10

15

20

25

30

contenant un oxydant (FeCl<sub>3</sub> par exemple). La quantité de PEDT dans le réseau est adaptée en fonction du temps d'immersion du film dans la solution oxydante.

Selon un deuxième mode de réalisation, le monomère EDT (commercialisé par la société STARK du Groupe Bayer) est incorporé dans le mélange de PEGDM et d'AIBN. Lors de la réticulation de la matrice, le monomère EDT est piégé dans le matériau tridimensionnel. Sa polymérisation ultérieure se fait comme dans le cas précédent par immersion dans une solution oxydante.

Selon un autre exemple de polymère conducteur utilisé en tant que premier élément, ce polymère est à base de carbazole ou l'un de ses dérivés formé par polymérisation chimique.

Par exemple des polycarbazoles N-substitués par des chaînes alkyles ou oligo (oxyéthylenes) obtenus par synthèse oxidative chimique peuvent être utilisés. Un macromère à groupements oxyéthylenes contenant des carbazoles ou thiophènes pendants permettant une réticulation chimique est également possible.

Quel que soit le polymère conducteur constituant le premier élément, il est particulièrement stable, notamment aux UV, et fonctionne par insertion-désinsertion de cations (Na<sup>+</sup>, Li<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Ba<sup>2+</sup>...), ou alternativement d'ions H+ ou encore d'anions (CF<sub>3</sub>SO<sub>3</sub>, BF<sub>4</sub>, PF<sub>6</sub>, ClO<sub>4</sub>, Cl<sup>-</sup>, TFSI, SCN<sup>-</sup>...), ces ions étant éventuellement incorporés sous forme de sels fondus.

Selon encore un autre exemple de réalisation, le premier élément n'est pas à base de polymère conducteur, mais à base d'un mélange de molécules organiques, à savoir un mélange d'au moins deux matériaux électrochromes, l'un au moins ayant une coloration anodique (à base de 5, 10-phénazine ou un ses dérivés, l'autre au moins ayant une coloration cathodique (un sel de bipyridine).

Les dérivés de phénazines utilisés comme molécules organiques à coloration anodique peuvent être des 5,10 dialkyl 5,10 dihydrophénazine ou des 5,10-bis(2-hydroxypropyl)-5,10-dihydrophénazine ou des 5,10-diméthoxyméthyl-5,10-dihydrophénazine par exemple.

1.3 a expand le<del>lément du</del>n estressoné dens le mombo du firm qui premier lemant du mombo du la communicación especialment de mombo. Esta not

15

20

25

parmi les polyoxyalkylènes, et plus particulièrement encore il est à base de polyoxyéthylène (POE) ou l'un de ses dérivés.

Un exemple d'un tel polymère peut être réalisé à partir de poly(éthylène glycol)diméthacrylate ou (PEGDM) ou de poly(éthylène glycol)diacrylate ou de réseau poly(uréthane) ou poly(ester) à base de poly(oxyéthylene).

Par exemple, un mélange de 2g de poly(éthylèneglycol)diméthacrylate (PEGDM) (commercialisé par la société Aldrich, M=550 ou 875 g/mol), 2g de poly(éthylèneglycol)méthacrylate (PEGM) (commercialisé par la société Aldrich, M=475 g/mol), d'éthylènedioxythiophène (EDOT) (1 ou 2 ou 10% en masse par d'azo-bis-isobutyronitrile (AIBN) et PEGM) PEGDM rapport au (commercialisé par la société Aldrich, 1% en masse par rapport au PEGDM et PEGM) est coulé entre deux plaques de verre séparées par un joint de « téflon » (marque déposée). Un traitement thermique à 50°C suivi d'une postcuisson à 80°C permet la polymérisation / réticulation des fonctions méthacrylates. Un matériau tridimensionnel est formé dans lequel est piégé le monomère EDOT. Le film est ensuite immergé dans une solution contenant l'oxydant (FeCl<sub>3</sub> par exemple, commercialisé par la société Acros). La quantité de PEDOT dans le réseau dépend du temps d'immersion du film dans la solution oxydante. A partir des mêmes conditions opératoires, des mélanges de PEGDM et de PEGM allant de 90/10 à 10/90 en masse peuvent être réalisés pour moduler les propriétés mécaniques et de conduction ionique.

Une des méthodes permettant de quantifier les propriétés mécaniques du film consiste à utiliser la DMA (Dynamic Mechanical Analysis). A l'aide de cette méthode, on donne ci-après la température de tangente δ des différentes matrices PEGDM/PEGM en fonction de la masse molaire en PEGDM (M=875 et 550 g/mol) et la proportion massique de PEGDM et PEGM (x/y) introduit initialement est représentée dans le tableau qui suit.

Matrices	T <sub>tanδ</sub> (°C)
PC/PEGDM(M=875) (50/50)	-36
PEGDM (M=875) / PEGM (50/50)	-38
PEGDM (M=875) / PEGM (60/40)	-32
PEGDM (M=875) / PEGM (80/20)	-31
PEGDM (M=550) / PEGM (50/50)	-23
PEGDM (M=550) / PEGM (40/60)	-17
PEGDM (M=550) / PEGM (70/30)	-11

Lorsque l'on désire améliorer les propriétés de tenue mécanique du film auto supporté formé par le mélange des premier et second éléments, on prévoit d'incorporer audit mélange précédent un troisième élément, pouvant être luimême constitué d'un mélange ou de plusieurs polymères.

5

10

15

20

Selon un mode de réalisation, ce troisième élément est un polymère choisi parmi les polycarbonates, ou plus particulièrement encore ceux à base de diallyl carbonate de diéthylène glycol (le CR39) ou l'un de ses dérivés ou bien des monomères à base de méthacrylate tels que le poly(ethylène glycol) méthyl éther méthacrylate ou du méthacrylate de méthyle.

Pour une matrice PEGDM/PEGM/PC (40/40/20), un mélange de 2g de poly(éthylèneglycol)diméthacrylate (PEGDM) (commercialisé par la société Aldrich, M=875 g/mol), 2g de poly(éthylèneglycol)méthacrylate (PEGM) (commercialisé par la société Aldrich, M=475 g/mol), 1g de bisallylcarbonate (CR39) (commercialisé par la société Aldrich, M=274.27d'éthylènedioxythiophène (EDOT) (commercialisé par la société Stark, 2% en masse par rapport au PEGDM, PEGM et CR39, M=142 g/mol) est préparée. A ce mélange, est additionné 3% en masse d'azo-bis-isobutyronitrile (AIBN) (commercialisé par la société Aldrich) (pourcentage en masse par rapport au PEGDM, PEGM et CR39 introduits initialement) et 4% en masse d'un autre agent initiateur de polymérisation, le 1,1'-azobis(cyclohexanecarbonile) (commercialisé par la société Acros) (pourcentage en masse par rapport au CR39 introduit initialement). Comme précédemment, le mélange est coulé entre

Un traitement thermique à 55°C, puis à 80°C, et enfin à 100°C suivi d'une postcuisson à 120°C permet la polymérisation / réticulation des fonctions allyles et méthacrylates. La polymérisation ultérieure se fait comme dans le cas précédent, par immersion dans une solution oxydante. La quantité de PEDOT dans le réseau est adaptée en fonction du temps d'immersion du film dans cette solution oxydante.

Le mélange des premier, second, et éventuellement troisième éléments, conformés en film autosupporté, est alors positionné entre au moins deux substrats, chacune de leurs faces en regard du film autosupporté étant recouverte des couches conductrices inférieure et supérieure 2, 4, et éventuellement incorporant les amenées de courant, cet assemblage conformant alors un dispositif électrocommandable à propriétés optiques et/ou énergétiques variables.

10

15

25

30

Préalablement à l'assemblage du film au sein des deux substrats, ledit film a été imprégné de sel de Li<sup>†</sup> ou d'autres cations parmi ceux déjà énumérés et éventuellement d'un agent plastifiant.

Cette imprégnation peut être réalisée lors des étapes d'élaboration du film, en incorporant dans le mélange de monomères des trois éléments le sel de Li<sup>+</sup> dans le cas ou celui ci est insoluble dans les solvants de lavage et de polymérisation du monomère.

Selon un mode de réalisation de ce dispositif électrocommandable, la matrice forme soit un réseau, soit un réseau interpénétré de polymères.

Le principe est de polymériser et/ou de réticuler des mélanges (de monomères ou de prépolymères) des deuxième et troisième éléments contenant des fonctions dont les modes ou conditions de polymérisation ou de réticulation sont soit identiques, soit différents. Dans le premier cas, la matrice est un réseau, dans le second cas la matrice est un réseau interpénétré. La présence du troisième élément n'est pas indispensable. Dans ce dernier cas la matrice est aussi un réseau.

Par exemple, des monomères ou des prépolymères du deuxième élément polymérisant par voie radicalaire et des monomères du troisième élément polymérisant par voie radicalaire, cationique ou anionique, des polymères ou des prépolymères des deuxième et troisième éléments polymérisant à des températures identiques ou différentes.

10

15

20

25

30

Le premier élément apportant la fonctionnalité électrochrome est introduit soit directement dans le mélange initial des deuxième et troisième éléments, soit par imprégnation du réseau constitué des deuxième et troisième éléments. La présence du troisième élément n'est pas indispensable.

Dans un mode de réalisation, la polymérisation chimique du premier élément au sein des réseaux interpénétrés ainsi constitués est obtenue par trempage dans une solution contenant au moins un agent de polymérisation du premier élément (FeCl<sub>3</sub> par exemple). Selon le solvant de polymérisation, le temps de trempage, les concentrations initiales du monomère conjugué et l'épaisseur du film, des réseaux homogènes ou à gradient peuvent être obtenus.

Ainsi par exemple, les trois monomères formant les premier, second et troisième éléments sont mélangés initialement de la manière suivante :

Un premier réseau est formé à partir d'un mélange des monomères des deuxième et troisième élément (dans notre cas on mélange du poly(éthylène glycol)diméthacrylate (PEGDM) avec du diallyl carbonate de diéthylène glycol (CR39) en présence d'un mélange d'agents initiateurs de polymérisation (AIBN et POB). La polymérisation du POE (issu du PEGDM) est réalisée à 40°C. La polymérisation du (PC) issu du (CR39) est réalisée à 80°C. Le film formé subit alors une cuisson à 100°C. A ce stade, le premier réseau interpénétré est obtenu.

La polymérisation du premier élément (celui qui apporte la fonctionnalité électrochrome) au sein du premier réseau est obtenue par trempage du premier réseau précédent dans une solution oxydante (FeCl<sub>3....</sub>) l'excès des monomères du premier élément qui n'ont pas réagi est ôté par lavage dudit réseau obtenu après trempage dans une solution de méthanol.

Par exemple, un système fonctionnel de deux films autosupportés homogènes, tels que précédemment décrits (POE/PC/PEDT) encadrant un film autosupporté à base des deuxième et troisième élément (POE/PC), l'ensemble associé à des couches actives formant électrodes inférieure et supérieure est fonctionnel et permet d'obtenir des contrastes supérieurs à 3 entre un état oxydé et réduit. Cet ensemble est représenté dans le tableau ci-dessous et dispose de upratient produces protours. Tit des exemples amountaines à celles

10

15

20

25

30

obtenues pour des systèmes électrochromes connus de l'art antérieur (à savoir obtenus par des techniques de électrodépositions.

T <sub>L</sub> Etat oxydé (%)	T <sub>L</sub> Etat réduit (%)	Contraste
14,3	3,7	3,6
9,0	1,6	5,6
		2.7

Selon un deuxième mode de réalisation du film autosupporté, l'obtention du réseau reprend les principales étapes de la méthode d'obtention du réseau précédent.

Le premier réseau formé des second et troisième éléments est obtenu d'une manière similaire sauf en ce qui concerne la présence du premier élément. Celui-ci n'est pas présent initialement dans le mélange avec les deux autres.

Le premier réseau (POE/PC) sous une forme polymérisée est trempé dans une solution de monomère à base de premier élément pur (dans notre exemple, on rappelle que le premier élément est notamment à base de EDT). Après gonflement de la matrice du réseau POE/PC par l'EDT, la polymérisation est obtenue par trempage du premier réseau gonflé dans une solution oxydante (FeCl3, Tosylate de Fer,...). La pénétration du monomère puis de l'agent de polymérisation dans la matrice gonflée n'étant pas homogène dans l'épaisseur du film autosupporté, le réseau obtenu est à gradient.

La quantité de PEDT est plus importante en surface qu'au centre du film. En faisant varier la nature du solvant de la solution de polymérisation, le gradient peut être ajusté.

La formation du gradient de polymère conducteur dans la matrice isolante peut être suivi par l'évolution de rapport de la résistance ohmique à la surface du film par rapport à la résistance en épaisseur. En suivant l'évolution de ce rapport en fonction du temps d'immersion pour différents solvants, on peut observer l'influence de la nature du solvant et de la matrice sur la cinétique de polymérisation. Par un contrôle du temps d'immersion pour un solvant donné, il est possible de contrôler le gradient en polymère conducteur dans le film.

L'exemple de réalisation montre que le dispositif électrocommandable intégrant un film autosupporté à gradient entre deux substrats verriers munies au niveau de leur face respective en regard du film des couches actives (et des éventuelles amenées de courant) permet d'obtenir des contrastes supérieurs à 3 entre un état oxydé et réduit.

De même, préalablement à l'assemblage du film au sein des deux substrats, ledit film a été imprégné de sel de Li<sup>+</sup> ou d'un autre cation et éventuellement d'un agent plastifiant.

Cette imprégnation peut être réalisée lors des étapes d'élaboration du film, en incorporant dans le mélange de monomères des trois éléments le sel de Li<sup>†</sup> ou un autre cation.

10

15

20

25

30

Ces films autosupportés présentent un certain nombre d'avantages par rapport à une technique d'assemblage traditionnel (dépôt de couches) :

- un seul film est utilisable industriellement pour insérer les fonctions électrochromes dans les applications envisagées (décrites ci-après)
- l'interpénétration des deux espèces de polymères (le polymère électrochrome et le polymère de l'électrolyte) avec un gradient de polymère conducteur dans la matrice génère des couches extérieures créant de facto des surfaces de contact avec les électrodes (anode et cathode) sans en présenter les inconvénients (le délaminage)
- le matériau électrochrome est partiellement protégé vis-à-vis de l'extérieur augmentant de ce fait la durée de vie du dispositif électrocommandable

Par ailleurs, les deux verres formant les substrats du dispositif électrocommandable décrits précédemment sont en verre clair plan, standard, silico-sodo-calcique d'environ 2 mm d'épaisseur chacun.

L'invention s'applique de la même manière à des verres bombés et/ou trempés.

De même, au moins un des verres peut être teinté dans la masse, notamment teinté en bleu ou en vert, en gris, bronze ou brun.

Les substrats utilisés dans l'invention peuvent aussi être à base de polymère (PMMA, PET, PC...). On note aussi que les substrats peuvent avoir des termes peuvent avoir des termes peuvent avoir de termes peuvent avoir de termes peuvent avoir de termes de t

des contours arrondis ou ondulés (rond, ovale, « vagues », etc...).

Par ailleurs, au moins un des deux verres (sur la face qui n'est pas munie du système électrochrome ou équivalent) peut être recouvert d'un revêtement comportant une autre fonctionnalité (cette autre fonctionnalité pouvant être par exemple un empilement anti-solaire, un empilement anti-salissure ou autre). En tant qu'empilement anti-solaire, il peut s'agir d'un empilement de couches minces déposées par pulvérisation cathodique et comprenant au moins une couche d'argent. On peut ainsi avoir des combinaisons du type

- -verre/système électrochrome/couches anti-solaire/verre.
- -verre/système électrochrome/verre/thermoplastique/verre.
- -verre/système électrochrome/thermoplastique/verre

10

15

20

Le thermoplastique peut être choisi parmi le PVB, PU,EVA

On peut aussi déposer le revêtement anti-solaire non pas sur un des verres, mais sur une feuille de polymère souple du type PET (polyéthylènetéréphtalate).

Pour des exemples de revêtements anti-solaires, on peut se reporter aux brevets EP 826 641, EP844 219, EP 847 965, WO99/45415, EP 1 010 677.

Le dispositif objet de l'invention précédemment décrit peut être aussi intégré au sein d'un « substrat » tri-verre, ce dernier étant avantageusement utilisé lors de l'élaboration de vitrages conformes aux exigences de sécurité.

#### 16 REVENDICATIONS

- Dispositif électrocommandable à propriétés optiques/énergétiques de transmission ou de réflexion variables, caractérisé en ce qu'il est conformé en un film auto supporté, ledit film étant formé à partir d'un mélange d'au moins un premier élément adapté pour apporter une fonctionnalité électrochrome au mélange, et d'au moins un second élément adapté pour apporter une fonctionnalité d'électrolyte de transport de charges joniques au sein dudit mélange.
- Dispositif selon la revendication 1, caractérisé en ce que le mélange constitue une matrice unique qui est obtenue par polymérisation simultanée des premier et second éléments.

15

- 3. Dispositif selon la revendication 1, caractérisé en ce que le mélange constitue une matrice unique qui est obtenue par polymérisation successive des premier et second éléments.
- 4. Dispositif selon la revendication 1, caractérisé en ce que le mélange constitue une matrice unique qui est obtenue par polymérisation successive des premier et second éléments.
- 5. Dispositif selon l'une des revendications 1 ou 2, caractérisé en ce que le premier élément est un polymère conducteur.
  - 6. Dispositif selon la revendication 5, caractérisé en ce que le premier élément est un polymère à base de 3, 4 alkylène dioxythiophène ou l'un de ses dérivés.
- 7. Dispositif selon la revendication 5, **caractérisé en ce que** le premier élément est un polymère à base de carbazole ou l'un de ses dérivés.
  - 8. Dispositif selon la revendication 1, caractérisé en ce que le premier élément est un mélange d'au moins deux matériaux électrochromes, l'un au moins ayant une coloration anodique, l'autre ayant une coloration cathodique.
- Dispositif selon la revendication 8, caractérisé en ce que le matériau à coloration cathodique est un sel de bipyridine.

20

- 11. Dispositif selon l'une des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que le second élément est un polymère choisi parmi les polyoxyalkylènes

  12. Dispositif selon la revendication 11, caractérisé en ce que le second élément est choisi parmi les polyoxyéthylènes ou l'un de ses dérivés.

  Dispositif selon l'une des revendications 11 ou 12. caractérisé en ce
- 13. Dispositif selon l'une des revendications 11 ou 12, caractérisé en ce que le second élément est à base de poly(éthylène glycol) difonctionnel ou l'un de ses dérivés.
- 14. Dispositif selon l'une des revendications 1 à 13, caractérisé en ce que le film auto supporté comporte au moins un troisième élément adapté pour améliorer sa tenue mécanique ou pour améliorer la conductivité ionique.
- 15. Dispositif selon la revendication 14, caractérisé en ce que le troisième élément est un polymère choisi notamment parmi les polyacrylates, poly(méthacrylates), poly(carbonates), polyacétate, polyuréthanes, cellulosiques,...
  - 16. Dispositif selon l'une des revendications 14 ou 15, caractérisé en ce que le troisième élément est à base de diallyl carbonate de diéthylène glycol ou un de ses dérivés ou encore de poly(éthylène glycol)méthyl éther métacrylate.

<u>.</u> .

- 5

Ç.55

. . .

- 17. Dispositif selon l'une quelconque des revendications 1 à 16, caractérisé en ce que le film constitue un réseau interpénétré.
- 18. Dispositif selon l'une quelconque des revendications 1 à 16, caractérisé en ce que le film constitue un réseau semi-interpénétré.
- Dispositif selon l'une des revendications 1 à 17, caractérisé en ce qu'il présente un gradient de composition du premier élément situé selon une dimension caractéristique du film.
- 20. Système incorporant au moins un dispositif selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il comporte en outre au moins un substrat porteur, ledit dispositif étant disposé entre deux amenées de courant, respectivement inférieure et supérieure (« inférieure » correspondant à l'amenée de courant la plus proche du substrat porteur, par opposition à l'amenée de courant « supérieure » qui est la plus éloignée dudit substrat)



- 21. Système selon la revendication 20, caractérisé en ce qu'il s'agit d'un système électrochrome ou viologène.
- 22. Système selon l'une des revendications 20 ou 21, caractérisé en ce qu'il s'agit d'un toit auto pour véhicule, activable de façon autonome, ou d'une vitre latérale ou d'une lunette arrière pour véhicule, ou d'un rétroviseur.
- 23. Système selon l'une des revendications 20 ou 21, caractérisé en ce qu'il s'agit d'un pare-brise ou d'une portion de pare-brise.
- 24. Système selon l'une des revendications 20 ou 21, caractérisé en ce qu'il s'agit d'un panneau d'affichage d'informations graphiques et/ou alphanumériques, d'un vitrage pour le bâtiment, d'un rétroviseur, d'un hublot ou d'un pare-brise d'avion, ou d'une fenêtre de toit.
  - 25. Système selon l'une des revendications 20 ou 21, caractérisé en ce qu'il s'agit :
    - d'un vitrage intérieur ou extérieur pour le bâtiment,
    - d'un présentoir, comptoir de magasin pouvant être bombé,
    - d'un vitrage de protection d'objet du type tableau,
    - d'un écran anti-éblouissement d'ordinateur,
    - d'un mobilier verrier.

15

20

30

- d'une paroi de séparation de deux pièces à l'intérieur d'un bâtiment ou d'une automobile
- 26. Système selon l'une quelconque des revendications 20 à 25 caractérisé en ce qu'il fonctionne en transmission ou en réflexion.
- Système selon l'une des revendications 20 à 26, caractérisé en ce que le substrat est transparent, plan ou bombé, clair ou teinté dans la masse, de forme polygonale ou au moins partiellement courbe.
  - 28. Système selon l'une des revendications 20 à 27, caractérisé en ce que le substrat est opaque ou opacifié.
  - 29. Système selon l'une des revendications 20 à 28, caractérisé en ce qu'il incorpore une autre fonctionnalité.
  - 30. Procédé d'obtention d'un dispositif selon l'une quelconque des revendications il à 19, caractérisé en ce que:
    - un mélanger le second élément aves éventuellement le crossème encommon dessence d'un posmo d'illance de montre de second de considère de la constant de considère de la constant de consta

- on procède à la polymérisation du second élément par activation thermique du mélange et on poursuit l'activation thermique du mélange afin d'obtenir la polymérisation du troisième élément,

  le deuxième et le troisième élément sont polymérisés ou copolymérisés en une étape par activation thermique du mélange

  Procédé d'obtention selon la revendication 30, caractérisé en ce qu' on ajoute au mélange des second et troisième éléments, le premier élément,
  - on polymérise le premier élément par trempage du mélange à l'aide d'un agent initiateur de polymérisation
  - on effectue un rinçage du mélange
  - 32. Procédé selon la revendication 30, caractérisé en ce qu'
    - on effectue une mise en contact du mélange polymérisé des second et troisième éléments dans un bain à base du premier élément,
    - on polymérise le premier élément par trempage du mélange à l'aide
       d'un agent initiateur de polymérisation

.;'

- on effectue un rinçage du mélange.
- 33. Procédé selon l'une des revendications 30 à 32, caractérisé en ce que le film est imprégné de sel de Li<sup>+</sup>, ou d'un autre cation, et éventuellement d'un agent plastifiant.
- Procédé selon l'une des revendications 30 à 32, caractérisé en ce que l'imprégnation du film est réalisée lors des étapes d'élaboration du film, en incorporant dans le mélange de monomères des trois éléments, un apporteur de charge

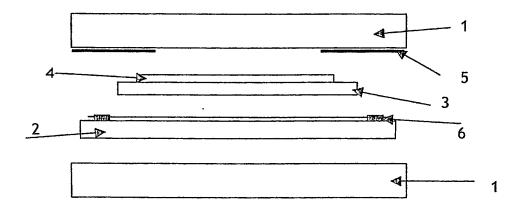
25

20

10

15

Figure unique





#### BREVET D'INVENTION

#### CERTIFICAT D'UTILITÉ



Code de la propriété intellectuelle - Livre VI

DÉSIGNATION D'INVENTEUR(S) Page N° 1../3.. DÉPARTEMENT DES BREVETS

26 bis, rue de Saint Pétersbourg 75800 Parts Cedex 08 Téléphone : 01 53 04 53 04 Télécopie : 01 42 93 59 30

(Si le demandeur n'est pas l'inventeur ou l'unique inventeur)

phone : 01 53 04 53 (	04 Télécople : 01 42 93 59 30		Cet imprimé est à remplir lisiblement à l'encre noire	08 113 W /260899		
os références po acultatif)	our ce dossier	GB2 2003060 FR				
° D'ENREGISTREMENT NATIONAL		03/08647				
TRE DE L'INVE	NTION (200 caractères ou es	paces maximum)				
FILM ELECTRO	COMMANDABLE A PR	OPRIETES OF	PTIQUES ET/OU ENERGETIQUES VARIABLES			
LE(S) DEMANDE	TIP(S) ·					
SAINT-GOBAII 18 AVENUE D' 92400 COURBE	N GLASS FRANCE ALSACE EVOIE					
utilisez un form	N TANT QU'INVENTEUR sulaire identique et numé	rotez chaque i	en haut à droite «Page N° 1/1» S'il y a plus de t page en indiquant le nombre total de pages).	rois inventeurs,		
Nom		MATHEY				
Prénoms	<u></u>		GREGOIRE			
Adresse	Rue	. 117 AVEN	UE GENERAL LECLERC			
	Code postal et ville	92340	BOURG LA REINE			
Société d'appart	enance (facultalif)					
Nom			BETEILLE			
Prénoms			FABIEN			
Adresse	Rue	25 RUE VI	CTOR HUGO			
	Code postal et ville	31250	REVEL			
Société d'appar	tenance (facultatif)					
Nom		CHEVRO	CHEVROT			
Prénoms		CLAUDE	CLAUDE			
Adresse	Rue	43 RUE SCHNAPPER				
	Code postal et ville	78100	SAINT GERMAIN EN LAYE			
Société d'appartenance (facultatif)						
DATE ET SIGNATURE(S) DU (DES) DEMANDEUR(S) OU DU MANDATAIRE (Nom et qualité du signataire) Le 07/08/2003 BOURGEOIS Georges Pouvoir 422-5/S.006						

La loi nº78-17 du 6 janvier 1978 relative à l'informatique, aux fichiers et aux libertés s'applique aux réponses faites à ce formulaire. Elle garantit un droit d'accès et de rectification pour les données vous concernant auprès de l'INPI.



#### BREVET D'INVENTION

#### CERTIFICAT D'UTILITÉ

Code de la propriété intellectuelle - Livre VI



#### **DÉPARTEMENT DES BREVETS**

26 bis, rue de Saint Pétersbourg 75800 Paris Cedex 08

## DÉSIGNATION D'INVENTEUR(S) Page N° 2../3..

(Si le demandeur n'est pas l'inventeur ou l'unique inventeur)

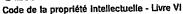
elephone : 01 53 04 53 04 Telecopie : 01 42 93 59 30			Cet imprimé est à remplir lisiblement à l'encre noire	DB 113 W /260899		
Vos références (facultatif)	pour ce dossier	GB2 2003060 FR				
N° D'ENREGIS	N° D'ENREGISTREMENT NATIONAL					
TITRE DE L'INV	/ENTION (200 caractères ou es	paces maximu	m)	•		
FILM ELECTROCOMMANDABLE A PR		COPRIETES	OPTIQUES ET/OU ENERGETIQUES VARIABLES	,		
LE(S) DEMANI	DEUR(S):	<del></del>	<del></del>	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		
	AIN GLASS FRANCE			•		
18 AVENUE I	D'ALSACE					
92400 COURI	BEVOIE					
			ez en haut à droite «Page N° 1/1» S'il y a plus de t	rois inventeurs,		
	mulaire identique et numei	·	e page en indiquant le nombre total de pages).			
Nom		TEYSSIE				
Prénoms		DOMINIC	QUE			
Adresse	Rue	11 RUE PRAIRIES				
	Code postal et ville	78230	LE PECQ			
Société d'appartenance (facultatif)						
Nom		TRAN-V	TRAN-VAN			
Prénoms		FRANCO	FRANCOIS			
Adresse	Rue	17 RUE DES COCHES				
	Code postal et ville	78100	SAINT GERMAIN EN LAYE			
Société d'appar	rtenance (facultatif)					
Nom		VIDAL				
Prénoms		FREDERIC				
Adresse	Rue	BAT PAV 10 RUE HENRI MATISSE				
	Code postal et ville	78280	GUYANCOURT			
Société d'appartenance (facultatif)						
DATE ET SIGNATURE(S) DU (DES) DEMANDEUR(S) OU DU MANDATAIRE (Nom et qualité du signataire) Lc 07/08/2003 BOUNGÉOIS Georges Foundir = 22-5/5.00+						

.....



#### BREVET D'INVENTION

#### **CERTIFICAT D'UTILITÉ**





#### DÉPARTEMENT DES BREVETS

DÉSIGNATION D'INVENTEUR(S) Page N° 3../3..

(Si le demandeur n'est pas l'inventeur ou l'unique inventeur) 26 bis, rue de Saint Pétersbourg 75800 Paris Cedex 08 Téléphone : 01 53 04 53 04 Télécopie : 01 42 93 59 30 Cet imprimé est à remplir lisiblement à l'encre noire DB 113 W /260899 GB2 2003060 FR Vos références pour ce dossier (facultatif) N° D'ENREGISTREMENT NATIONAL 03/08647 TITRE DE L'INVENTION (200 caractères ou espaces maximum) FILM ELECTROCOMMANDABLE A PROPRIETES OPTIQUES ET/OU ENERGETIQUES VARIABLES LE(S) DEMANDEUR(S): SAINT-GOBAIN GLASS FRANCE 18 AVENUE D'ALSACE 92400 COURBEVOIE DESIGNE(NT) EN TANT QU'INVENTEUR(S): (Indiquez en haut à droite «Page N° 1/1» S'il y a plus de trois inventeurs, utilisez un formulaire identique et numérotez chaque page en indiquant le nombre total de pages). **BEOUCH** Nom LAYLA Prénoms 10 RUE LES MARADAS VERTS Rue Adresse 95300 **PONTOISE** Code postal et ville Société d'appartenance (facultatif) Nom Prénoms Rue Adresse Code postal et ville Société d'appartenance (facultatif) Nom Prénoms Rue Adresse Code postal et ville Société d'appartenance (facultatif) DATE ET SIGNATURE(S) DU (DES) DEMANDEUR(S) **OU DU MANDATAIRE** (Nom et qualité du signataire) Le 07/08/2003 **BOURGEOIS Georges** Pouvoir 422-5/S.006

La loi nº78-17 du 6 janvier 1978 relative à l'informatique, aux fichiers et aux libertés s'applique aux réponses faites à ce formulaire. Elle garantit un droit d'accès et de rectification pour les données vous concernant auprès de l'INPI.

# This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

### **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:
☐ BLACK BORDERS
☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
FADED TEXT OR DRAWING
☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
Помиль

## IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.